

University of Groningen

## Ordering and low energy excitations in strongly correlated bronzes

Sagara, Dodderi Manjunatha

**IMPORTANT NOTE:** You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.

*Document Version*

Publisher's PDF, also known as Version of record

*Publication date:*

2006

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

*Citation for published version (APA):*

Sagara, D. M. (2006). *Ordering and low energy excitations in strongly correlated bronzes*. [Thesis fully internal (DIV), Groningen]. [s.n.].

### Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

The publication may also be distributed here under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license. More information can be found on the University of Groningen website: <https://www.rug.nl/library/open-access/self-archiving-pure/taverne-amendment>.

### Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.

## Samenvatting

In elk gecondenseerd systeem, of het nu supergeleidend is, een periodieke ladingsdichtheid heeft, of welke grondtoestand dan ook heeft, zijn er twee aspecten die de aandacht van de wetenschappelijke gemeenschap trekken. In vaste stoffen zijn dit de *ordering* en de *aangeslagen toestanden* van het materiaal. De ordering van het materiaal kan het gevolg zijn van elektronische, rooster-, spin- of orbitaal-vrijheidsgraden, of zelfs van een *koppeling* tussen een aantal van deze. De totale energie van een grondtoestand is vaak niet het belangrijkste gegeven van een systeem, belangrijker is het gedrag van de lager liggende aangeslagen toestanden of lage-energie excitaties ten opzichte van de grondtoestand. Dus zullen de meeste experimenten die in dit proefschrift gepresenteerd worden zich niet op de grondtoestand van het betreffende systeem richten, maar eerder op het gedrag van de aangeslagen toestanden en dan vooral op de lage-energie excitaties. Deze lage-energie toestanden kunnen worden bezet bij relatief lage temperaturen en kunnen ook bezet raken door de aanwezigheid van een extern veld. Er zijn twee kwalitatief verschillende soorten elementaire excitaties, waarvan de meest conventionele en best begrepen de zogenaamde *quasi-deeltjes* zijn. Deze excitaties lijken veel op "normale" elektronen, echter, ze zijn relatief zwaarder door de interactie die ze hebben met andere, soortgelijke excitaties in het systeem. De andere soort excitatie is de *collectieve excitatie*, waartoe onder andere het plasmon, het fonon en het exciton behoren. Collectieve excitaties kan men definiëren als "*gequantiseerde excitaties ten gevolge van de coöperatieve interactie tussen quasi-deeltjes*". De collectieve excitaties in metalen zijn bijvoorbeeld plasmonen, wat in feite niets anders dan gequantiseerde trillingen van de elektronen zijn. Het woord *collectief* impliceert dat deze excitaties zich gedragen alsof ze een *enkele* aangeslagen toestand karakteriseren. In het geval van een ladings-dichtheids-golf grondtoestand (een toestand met een periodieke ladingsdichtheid) zijn er twee soorten collectieve excitaties mogelijk, namelijk *fasonen* en *amplitudons*.

In het huidige onderzoek hebben we ons gericht op twee aspecten, ten eerste: ordering in sterk gecorreleerde bronzen en ten tweede: lage-energie excitaties in zulke geordende systemen. Het unieke van dit onderzoek is dat het drie *onderdelen* aanspreekt van de collectieve *amplitudon* excitatie. Dit zijn de oorsprong, het verloop en het verval/de ontfasing van het coherente amplitudon.

In hoofdstuk twee wordt de ladings-dichtheids-golf (LDG) bestudeerd met behulp van ultrasnelle tijdsopgeloste optische spectroscopie, waarmee de *dynamis-*

de aspecten van verscheidene excitaties als coherente amplitudons, coherente fononen en quasi-deeltjes wordt onderzocht, alsmede uiteindelijk de dynamica van de wederzijdse interactie tussen deze excitaties. Bij relatief hoge intensiteit van de excitatie-, of pomp-puls heeft is de tijdsafhankelijke-reflectiviteits respons van het systeem opgebouwd uit bijdragen van de door licht geëxciteerde quasi-deeltjes, coherente amplitudons, coherente fononen en van andere, niet-coherente excitaties zoals fononen. Met behulp van intensiteits- en golflengte-afhankelijke 'pump-probe' ('pomp-meet') experimenten hebben we de verval-/ontfasingstijd van deze excitaties vastgesteld. Ons onderzoek laat zien dat de coherente amplitudons worden gegenereerd door het ultrasnelle verval van de door licht geëxciteerde quasi-deeltjes. *De intensiteit van de coherente amplitudons (piek vs. piek) volgt de quasi-deeltjes intensiteit. De coherente amplitudons ontfasen (verliezen hun onderlinge relatieve fase) wanneer de vervaltijd van de licht-geëxciteerde quasi-deeltjes groter is dan de periode van het coherente amplitudon.* Aan de andere kant leverde de poging om een fase-overgang te induceren met behulp van licht geen positieve resultaten op. Ook ontkrachten de resultaten uit dit onderzoek de eerdere bewering dat "de lang levende tijdsafhankelijke reflectiviteits component ( $\approx 1$  ns) een gevolg is van 'ontpinde' fononen". Dit zou onderzoekers kunnen bewegen om tijdsopgeloste pump-probe experimenten op soortgelijke LDG materialen uit te voeren. De twee coherente fononen (bij 2.25 en 2.5 THz, respectievelijk) zijn ook waargenomen.

In hoofdstuk drie hebben we de LDG materialen,  $\text{K}_{0.3}\text{MoO}_3$  en  $\text{Rb}_{0.3}\text{MoO}_3$ , bestudeerd door middel van een uitgebreid Raman spectroscopie onderzoek. De frequentie van de amplitudon-excitatie in  $\text{Rb}_{0.3}\text{MoO}_3$  is  $3 \text{ cm}^{-1}$  lager dan in  $\text{K}_{0.3}\text{MoO}_3$ , overeenkomend met het feit dat het Rb atoom zwaarder is dan het K atoom. Een gedetailleerde, temperatuursafhankelijkheids-studie bracht de interactie tussen de lage-energie excitaties, zoals amplitudons, fononen en mogelijke fase-fononen, aan het licht. Het meest opvallende kenmerk in de Raman spectra is de afwijkende temperatuursafhankelijkheid van de amplitudon-intensiteit. We laten zien dat dit wordt veroorzaakt door de aanwezigheid van sterke 1D-Peierls fluctuaties dichtbij  $T_{LDG}$ . De aanwezigheid van de LDG-gap heeft invloed op het verval van de lage-energie fononen. Lage-energie fononen leven langer omdat verval ten gevolge van electron-fonon verstrooiing niet mogelijk is, terwijl de hogere-energie fononen juist sneller vervallen. Hoewel een overgang van een on-evenredige ('incommensurate') naar een evenredige ('commensurate') fase te zien is in  $\text{K}_{0.3}\text{MoO}_3$  (in de vorm van een sprong in de fonon-frequentie bij 100 K), hebben we een dergelijke overgang niet kunnen zien in  $\text{Rb}_{0.3}\text{MoO}_3$ .

De infrarood experimenten die we hebben uitgevoerd op pure en gedoteerde

$K_{0.3}MoO_3$  [zie hoofdstuk vier], laten zien dat er geen Machida-type 'midgap' toestanden in de Peierls gap in  $K_{0.3}MoO_3$  voorkomen, in tegenstelling tot wat in eerdere studies is gevonden. Het concept van fase-fononen wordt opnieuw bekeken en de discussie leidt uiteindelijk tot de conclusie dat "Niet alle fononen die verschijnen in de richting van de keten fase-fononen zijn". De W-dotering heeft invloed op de LDG toestand omdat het W atoom zich gedraagt als een onzuiverheid die de 'pinning' potentiaal in de LDG toestand verandert.

Tenslotte wordt een andere klasse van bronzen,  $K_{0.3}WO_3$ , bestudeerd in hoofdstuk vijf. In het onderzoek kwam naar boven dat er tenminste twee locale structurele excitaties (LSE's) zijn, waartussen het systeem heen en weer 'springt'. De orde-wanorde overgang wordt *gedreven* door deze LSE's. Een tweede orde fase-overgang is ook te zien in deze materialen, mogelijk ten gevolge van de Jahn-Teller vervorming. Een gedetailleerd onderzoek, waarbij zowel de samenstelling als de temperatuur van  $K_{0.3}WO_3$  onafhankelijk gevarieerd worden, zou de stoichiometrie-afhankelijkheid van de LSE's bij een bepaalde temperatuur kunnen ophelderen, alsmede de temperatuurs-afhankelijkheid bij een bepaalde stoichiometrie.

Samenvattend, in het huidige onderzoek hebben we gekeken naar de ordening en de lage-energie excitaties, zowel quasi-deeltjes en collectieve excitaties, in sterk gecorreleerde bronzen. Beide soorten bronzen,  $A_{0.3}MoO_3$  ( $A = K, Rb$ ) and  $M_xWO_3$  ( $M = K, Rb$ ) laten metaal-isolator overgangen met verschillende mechanismen zien. In het geval van  $A_{0.3}MoO_3$ , gaat de overgang door middel van de ladings-ordening, die gedreven wordt door de Peierls instabiliteit van het systeem, terwijl in het geval van  $M_xWO_3$  de overgang gaat door middel van rooster-ordening, gedreven door lokale structurele excitaties.

